

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

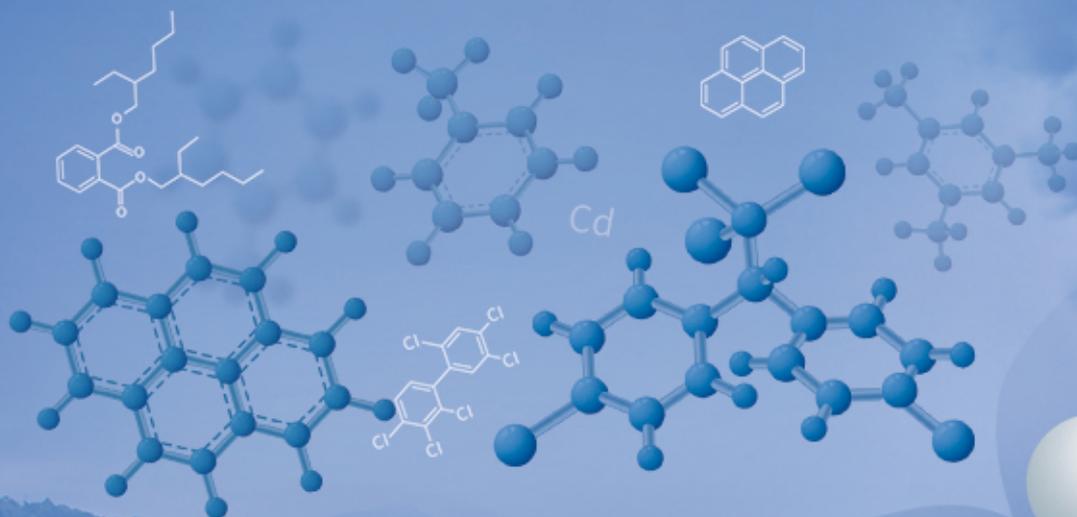
ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

升金湖水体优先污染物筛选与风险评价

龚雄虎, 丁琪琪, 金苗, 薛滨, 张路, 姚书春, 王兆德, 卢少勇, 赵中华



PAHs

VOCs

HMs

PCBs

OCPs

PAEs

ANTs

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年10月

第42卷 第10期

Vol.42 No.10

目次

PM_{2.5} 化学组分连续观测在污染事件源解析中的应用 蔡凡涛, 尚玥, 戴维, 谢鸣捷 (4575)

汾渭平原 PM_{2.5} 空间分布的地形效应 黄小刚, 赵景波, 孙从建, 汤慧玲, 梁旭琦 (4582)

华中地区冬季灰霾天气下 PM_{2.5} 中重金属污染特征及健康风险评价: 以湖北黄冈为例
..... 李星谕, 毛瑶, 陈展乐, 刘威杰, 程铖, 石明明, 许安, 苏业旺, 胡天鹏, 祁士华, 邢新丽 (4593)

华北区域大气中羰基化合物体积分数水平及化学反应活性 黄禹, 陈曦, 王迎红, 刘子锐, 唐贵谦, 李杏茹 (4602)

成都市春季 O₃ 污染特征及关键前体物识别 韩丽, 陈军辉, 姜涛, 徐晨曦, 李英杰, 王成辉, 王波, 钱骏, 刘政 (4611)

基于边界观测的长三角某工业区 O₃ 来源特征 黄晴, 黄银芝, 张珊, 金丹, 高松, 修光利 (4621)

廊坊开发区 8~9 月 O₃ 污染过程 VOCs 污染特征及来源分析 张敬巧, 王宏亮, 方小云, 刘锐泽, 丁文文, 凌德印, 王淑兰 (4632)

广东省家具行业基于涂料类型的 VOCs 排放特征及其环境影响
..... 曾春玲, 邵霞, 刘锐源, 姚懿娟, 李银松, 侯墨, 刘洋, 范丽雅, 叶代启 (4641)

厦门湾空气质量对新冠疫情管控的响应 徐超, 吴水平, 刘怡婧, 钟雪芬 (4650)

北京平原和延庆地区山谷风异同及对污染的影响 吴进, 李琛, 马志强, 孙兆彬, 韩婷婷, 邱雨露, 马小会, 李颖芳, 朱晓婉 (4660)

两湖盆地冬季区域大气颗粒物污染特征及独特的风场和下垫面影响
..... 朱燕, 赵天良, 白永清, 徐家平, 孙晓芸, 胡未央, 常嘉成, 杨婕, 朱从祯 (4669)

燃煤电厂颗粒物中硫酸根与硝酸根离子的转化规律 杨柳, 何晴, 盛重义 (4678)

长江流域主要干/支流化学特征及外源酸的影响 王琪, 于爽, 蒋萍萍, 孙平安 (4687)

土地利用对太湖入流河道营养盐的影响 连心桥, 朱广伟, 杨文斌, 康丽娟, 朱梦圆, 许海 (4698)

基于 eDNA 技术的渭河浮游动物多样性及关键种生态位特征
..... 梁东, 夏军, 宋进喜, 常剑波, 吴琼, 程丹东, 张怡暄, 孔飞鹤, 任源鑫 (4708)

三亚市水体中 PPCPs 的污染水平、分布特征及生态风险评价 任丙南, 耿静 (4717)

升金湖水体优先污染物筛选与风险评价 龚雄虎, 丁琪琪, 金苗, 薛滨, 张路, 姚书春, 王兆德, 卢少勇, 赵中华 (4727)

天目湖沙河水库水生态安全状况长期变化及影响因素 杨文斌, 段文秀, 崔扬, 朱广伟, 吴天浩, 许海, 朱梦圆 (4739)

华中地区供水水库抗生素抗性基因的季节变化及影响因素 张凯, 辛蕊, 李观家, 王倩, 王亚南, 许智恒, 崔向超, 魏巍 (4753)

快速城镇化进程中珠江三角洲硝酸型地下水赋存特征及驱动因素 吕晓立, 刘景涛, 韩占涛, 朱亮, 张玉玺 (4761)

盐城地区地表水化学空间特征及控制因素分析 王建, 张华兵, 许君利, 彭俊 (4772)

基于沉积物中总氮和总磷垂向分布与吸附解吸特征的白洋淀清淤深度
..... 周亚婷, 陈兴宏, 李立青, 张伟军, 张美一, 王东升, 王洪杰 (4781)

硼酸和磷酸对 PMS/Co²⁺ 均相催化氧化有机物的影响因素与机制 万琪琪, 陈铸昊, 曹瑞华, 王静怡, 李刚 (4789)

磁性生物炭负载 α-MnO₂ 活化过一硫酸盐降解 2,2',4,4'-四溴联苯醚 李鑫, 尹华, 罗昊昱, 欧阳晓芳, 刘航, 祝铭韩 (4798)

紫外活化过硫酸钠灭活水中噬菌体 MS2 的特性及机制 张崇森, 杨昊明, 王真 (4807)

铈改性水葫芦生物炭对磷酸盐的吸附特性 王光泽, 曾薇, 李帅帅 (4815)

低温地下水净化工艺中氨氮去除性能及机制 李冬, 刘孟浩, 张瑞苗, 曾辉平, 张杰 (4826)

我国城市污泥中重金属的赋存形态与生态风险评价 耿源濛, 张传兵, 张勇, 黄豆豆, 闫姝骁, 孙腾飞, 程柳, 王静, 毛宇翔 (4834)

不同气候类型下污水厂活性污泥中微生物群落比较 杨思航, 秦泽生, 梁漫春 (4844)

部分亚硝化-厌氧氨氧化协同反硝化处理生活污水脱氮除碳 秦彦荣, 袁忠玲, 张明, 张民安, 刘安迪, 付雪, 马娟, 陈永志 (4853)

同步短程硝化-厌氧氨氧化-短程反硝化颗粒污泥培育过程及其性能 周峰, 刘勇弟, 厉巍 (4864)

多种微塑料提取方法在中国典型土壤中的应用 赵小丽, 刘子涵, 从辰宇, 韩剑桥 (4872)

柴达木盆地表土重金属污染与来源分析 陈亮, 张西营, 唐启亮, 耿盛, 王二龙, 李姜瑶 (4880)

快速城市化区域不同用地类型土壤重金属含量分布特征及生态风险 李梦婷, 沈城, 吴健, 黄沈发, 李大雁, 王敏 (4889)

广西都安县典型水田晒地球化学特征及影响因素 刘飞, 杨柯, 徐仁廷, 唐世琪 (4897)

炭化苹果枝通过减少土壤 DTPA-Cd 降低苹果砷木镉积累和镉伤害 邓波, 荀咪, 张玮玮, 杨洪强 (4908)

海南省集约化种植园中谷物、蔬菜和水果中重金属累积程度及健康风险
..... 杨剑洲, 王振亮, 高健翁, 严慧, 胡树起, 唐世新, 龚晶晶 (4916)

环境中抗生素抗性基因丰度与抗生素和重金属含量的相关性分析: 基于 Web of Science 数据库检索 苗荪, 陈磊, 左剑恶 (4925)

银川市农田土壤中四环素类抗生素的污染特征及生态风险评估 张小红, 陶红, 王亚娟, 马志义, 周泽英 (4933)

施用不同来源粪肥对土壤中抗生素淋溶的影响 李斌绪, 朱昌雄, 宋婷婷, 马金莲, 张治国, 李红娜 (4942)

我国典型森林土壤微生物驱动的氮代谢途径特征解析 吕雪丽, 赵永鹏, 林清火, 彭显龙, 尹云锋, 蒋先军 (4951)

青藏高原高寒湿地春夏两季根际与非根际土壤反硝化速率及 nirS 型反硝化细菌群落特征分析
..... 李玉倩, 马俊伟, 高超, 霍守亮, 夏星辉 (4959)

松嫩平原芦苇湿地退化与修复过程中土壤细菌和甲烷代谢微生物的群落结构
..... 王秋颖, 王娜, 刘颖, 陈功, 何辉, 高婕, 庄绪亮, 庄国强 (4968)

不同轮作休耕下潮土细菌群落结构特征 南镇武, 刘柱, 代红翠, 张磊, 王娜, 徐杰, 刘开昌, 孟维伟, 王旭清 (4977)

稻田土壤光合细菌群落对镉污染的响应 罗路云, 金德才, 王殿东, 陈昂, 张德咏, 曾军, 匡炜, 张卓, 刘勇 (4988)

铁尾矿芦苇根际微生物和根内生菌群落分布及其限制性因子解析 曹曼曼, 王飞, 周北海, 陈辉伦, 袁蓉芳 (4998)

有机无机氮配施对不同程度盐渍土硝化和反硝化作用的影响 周慧, 史海滨, 张文聪, 王维刚, 苏永德, 闫妍 (5010)

水稻产量、稻田 CH₄ 和 N₂O 排放对长期大气 CO₂ 浓度升高的响应 于海洋, 宋开付, 黄琼, 王天宇, 张广斌, 马静, 朱春梧, 徐华 (5021)

原料和热解温度对生物炭中可溶性有机质的影响 闫代红, 马亚培, 宋凯悦, 马红亮, 高人, 尹云锋 (5030)

中国 84 个主要城市大气热岛效应的时空变化特征及影响因素 李宇, 周德成, 闫章美 (5037)

室内建筑装饰装修材料气味物质及其释放研究进展 张万众, 张彭义 (5046)

《环境科学》征订启事 (4814) 《环境科学》征稿简则 (4871) 信息 (4907, 5009, 5029)

升金湖水体优先污染物筛选与风险评价

龚雄虎^{1,2}, 丁琪琪^{1,2}, 金苗¹, 薛滨¹, 张路¹, 姚书春¹, 王兆德¹, 卢少勇³, 赵中华^{1*}

(1. 中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室, 南京 210008; 2. 中国科学院大学, 北京 100049; 3. 中国环境科学研究院湖泊水污染治理与生态修复技术国家工程实验室, 北京 100012)

摘要: 为保护升金湖国家自然保护区湿地的生态环境,以7大类168种人类化学品为靶向分析目标物,研究其在升金湖水体中的赋存水平及空间分布特征(O)、综合化合物持久性(P)和生物累积性(B)等毒害性评价指标以及生态风险(E)和人体健康风险(H)等毒性参数,采用综合评分法筛选识别升金湖水体优先污染物,构建升金湖水体优控清单,评价升金湖优先污染物水环境生态及健康风险.结果表明,升金湖水体7大类化合物[挥发性有机物(VOCs)、多环芳烃(PAHs)、有机氯农药(OCPs)、多氯联苯(PCBs)、邻-苯二甲酸酯(PAEs)、抗生素(ANTs)以及金属元素(HMs)]污染普遍,其中上湖污染负荷高于中湖和下湖,呈现坝前蓄积现象.以污染物类别计,综合评分法优先污染物筛选结果显示升金湖水体检出化学品优先级顺序为:PAEs>OCPs>HMs>PCBs>PAHs>VOCs>ANTs.高优先级污染物清单中综合得分最高的10种化合物包括:邻-苯二甲酸二乙基己酯(DEMP)、邻-苯二甲酸二环己酯(DCHP)、PCB138、邻-苯二甲酸二正辛酯(DOP)、邻-苯二甲酸二壬酯(DNP)、七氯(HC)、*p,p'*-滴滴涕(DDT)、钡(Ba)、环氧七氯(HCE)和邻-苯二甲酸二己酯(DHP).升金湖水体优先污染物生态风险商(RQ)为4.3~15.9,具有较高的生态风险,且上湖区风险高于中、下湖区.人体暴露健康风险评价表明,HMs的非致癌风险最大(风险指数HI>1),其次为PAEs和OCPs,优先污染物通过饮水和皮肤接触途径暴露对人体健康产生的致癌风险(人体终生致癌风险ILCR<10⁻⁶)可以忽略.本研究优化基于环境监测数据建立的优先污染物综合评分法,全面考虑了化学品毒害特性、生态及人体健康暴露风险(OPBEH),为开展广泛的湖泊流域水环境优先污染物筛选提供统一的方法学指导,并为建立相应湖泊流域优控清单,制定优先污染物排放和管控标准提供科学依据.

关键词: 优先污染物; 综合评分法; 生态风险; 人体健康风险; 升金湖

中图分类号: X524 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)10-4727-12 DOI: 10.13227/j.hjxx.202102117

Screening of Priority Pollutants and Risk Assessment for Surface Water from Shengjin Lake

GONG Xiong-hu^{1,2}, DING Qi-qi^{1,2}, JIN Miao¹, XUE Bin¹, ZHANG Lu¹, YAO Shu-chun¹, WANG Zhao-de¹, LU Shao-yong³, ZHAO Zhong-hua^{1*}

(1. State Key Laboratory of Lake Science and Environment, Nanjing Institute of Geography and Limnology, Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210008, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. National Engineering Laboratory for Lake Pollution Control and Ecological Restoration, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract: Shengjin Lake, which serves as an important National Nature Reserve, is suffering from chemical pollution due to rapid industrial and agricultural development in the circumjacent basin. Therefore, 168 anthropogenic toxic chemicals were determined to examine their spatial distribution and identify priority pollutants using a ranking system based on occurrence(O), persistence(P), bioaccumulation(B), ecological risk(E), and human health risk(H). Ecosystem and human health risks were also assessed. The spatial distribution of pollutants indicated that higher concentrations occur in the upper lake area compared to the middle and lower lake areas because of Jiang Dam. According to the derived priority pollutant list, phthalate esters(PAEs), organochlorine pesticides(OCPs), and heavy metals(HMs) are high-priority pollutants; polychlorinated biphenyls(PCBs), polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs), and volatile organic compounds(VOCs) are medium-priority pollutants; and antibiotics(ANTs) are low-priority pollutants. The ecology risk quotient(RQ) of the high-priority pollutants ranged from 4.3 to 15.9, indicating severe ecology risk to the aquatic organism, and higher risks were found in the upper lake areas. Additionally, the human health risk assessment revealed negligible carcinogenic risks associated with high-priority pollutants. The comprehensive ranking system established in this study can be applied to other lake basins by altering the measured concentrations to screen for priority pollutants, offering a scientific foundation for identifying priority control pollutants for watershed management.

Key words: priority pollutants; comprehensive ranking system; ecology risk; human health risk; Shengjin Lake

升金湖是以保护淡水湖泊湿地生态系统和珍稀濒危水禽为主的自然保护区,每年有超过70 000只的候鸟在升金湖湿地越冬^[1,2].2015年升金湖被列入国际重要湿地^[3].升金湖位于长江中下游南岸,通过黄溢闸的调节功能有效地连接长江,提供水鸟栖息需要的湿地湖滩和食物.升金湖流域总面积为1 445.2 km²,流域总人口为23.5万人,其中95.5%为农村人口.2018年流域GDP为18.8亿

元,农业为第一产业,主要以种植水稻、棉花和油菜等作物为主.升金湖及其出入湖河流为流域内居民提供重要的饮用水和灌溉用水^[4].另外,流域内存

收稿日期: 2021-02-18; 修订日期: 2021-04-06

基金项目: 科技基础性工作专项(2015FY110900-03); 国家重点研发计划项目(2019YFA0607100); 国家自然科学基金项目(41671477,41771519)

作者简介: 龚雄虎(1994~),男,博士研究生,主要研究方向为环境污染化学, E-mail: xhugong@126.com

* 通信作者, E-mail: zhzhao@niglas.ac.cn

在少量的工业,主要为矿山开采和建筑材料加工^[4].耕地和林地是升金湖流域主要的土地利用类型,但是近年来建设用地的比例也在逐渐增大^[5].总的来说,升金湖具有提供水资源、调蓄洪水、保护生物的多样性、提供生物栖息场所等多项生态服务功能^[6].然而,由于流域经济发展和人口增多,导致大量的营养盐和化学品进入升金湖及其周边河流,造成水体富营养化和有毒有害物质污染.何祥亮等^[7]估算得到2016年通过农村生活用水和农田径流污染排放到升金湖的化学需氧量(COD)分别达到了1 099 t和2 700 t,升金湖处于中富营养状态.张明真等^[8]的研究发现升金湖沉积物中镉、铜、汞和铅等重金属污染处于中、高度生态风险状态.然而,通过文献调阅显示,升金湖关于其他化学品(比如多环芳烃、抗生素和塑化剂等)的数据严重缺乏,同时这些物质可以导致生物致癌、致畸和人体生殖和神经系统损伤^[9-11].因此,人们迫切需要对升金湖化学品展开全面分析,以保护河湖水环境以及水生生物和人体健康.

截至2020年末,CAS登记在册的化学品已超过1个亿,并且以25%的年增长速度增加.面对如此巨大数量的化学品,对所有化学品实施有效管控是难以实现的,因此筛选优先污染物,建立优先污染物清单,是削减化学品及寻找安全替代品的重要依据.近年来,许多国家在制定必要的环境保护法规的同时,开展了有毒有害污染物的筛选和优先控制等研究和管理工作,通过定量和半定量的评分系统建立优先污染物清单^[12].Zhang等^[13]的研究通过污染物单因子生态风险商值法对环渤海湾淡水中56种污染物进行优先性,但是此方法没有考虑污染物环境检出率以及化合物危害性参数对筛选结果的影响.美国采用污染物检出频率、污染物毒性和人群潜在暴露危害等参数筛选优先污染物,但使用的却是半定量而非定量的评分系统^[12].欧盟水框架指令WFD提出了一种以污染物的持久性、毒性、生物蓄积性和内分泌干扰性为指标来计算总得分进行排序^[14],忽略了污染物对人体暴露和生态系统的潜在危害.因此,本研究基于环境监测浓度,综合化合物危害性(持久性和生物积累潜力)以及水生生物和人体健康暴露风险的多参数的综合评分法,以综合得分进行排序,建立水环境优先污染物清单.本研究采用综合评分法,以包含多环芳烃(PAHs)、抗生素(ANTs)、有机氯农药(OCPs)、金属元素(HMs)、多氯联苯(PCBs)、挥发性有机物(VOCs)和邻-苯二甲酸酯(PAEs)在内的7类168种化合物为目标污染物,调查分析升金湖污染状况,筛选识别优先污染

物,建立湖泊水环境优控清单,并对优控清单化合物水环境生态及人体健康风险进行评价,明确升金湖优先污染物风险,科学评价水环境安全及生态系统健康,服务于湖泊流域污染物环境基准值的确定,制定污染物流域管控及削减标准,保障地表水生态系统服务功能.

1 材料与方法

1.1 研究区域与样品采集

升金湖位于安徽省池州市(116°55'~117°15'E, 30°15'~30°30'N),属于中国东部季风区,年平均降水量为1 600 mm,年平均气温为16℃^[2,3].升金湖水域面积为133 km²,主要补给水来源于西南部张溪镇的张溪河以及东部唐田镇的唐田河.全湖由上湖、中湖和下湖这3个部分组成,其中上湖和中湖之间有姜坝相隔.升金湖湿地植物种类繁多,包括大豆、莲、四角刻叶菱和水蕨这4种国家Ⅱ级重点保护野生植物.同时动物资源丰富,其中包括浮游动物13种、底栖动物23种、鱼类63种、爬行类13种以及鸟类175种^[15].每年冬天通过黄溢闸的调节功能将湖水引入长江,使湖面水位下降裸露出大量滩涂和草滩,给大量越冬的水鸟提供栖息地和食物.

于2019年5月,分别在升金湖上中下湖区均匀布设15个点位(图1),利用有机玻璃采水器采集表层水样.每个点位取3份平行水样进行现场混合,然后将混合水样装入棕色具塞磨口玻璃瓶中保存.另外,VOCs样品的采集过程是:在加有25 mg抗坏血酸的40 mL棕色玻璃瓶中加入原水,然后向样品瓶中加入0.5 mL的6 mol·L⁻¹盐酸溶液,再迅速拧紧瓶盖,保证水样充满40 mL棕色瓶,并且无气泡,封口膜封口.采集的样品暗处保存,尽快运回实验室置于4℃冰箱内保存.所有分析工作在采样后的7 d内

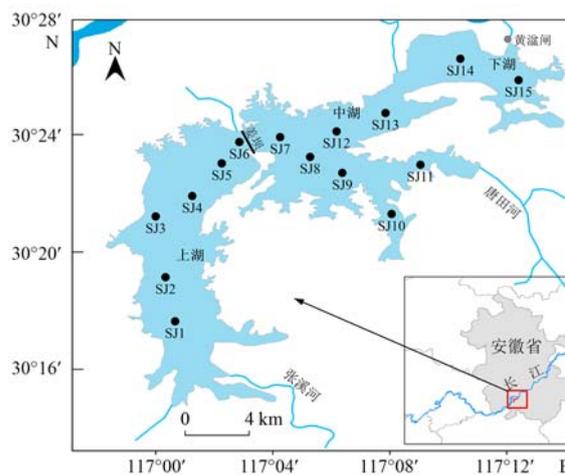


图1 升金湖采样点位示意

Fig. 1 Sampling sites of water samples in Shengjin Lake

完成.

1.2 样品前处理

本研究一共选取了 168 种化合物为目标污染物,包括 16 种优控多环芳烃(PAHs)、20 种有机氯

农药(OCPs)、18 种多氯联苯(PCBs)、16 种邻-苯二甲酸酯(PAEs)、23 种金属元素(HMs)、24 种挥发性有机污染物(VOCs)和 51 种抗生素(ANTs). 目标有毒污染物具体化合物详见表 1.

表 1 目标有毒污染物清单¹⁾

Table 1 List of target toxic pollutants

类别	化合物
金属元素(HMs)	铍(Be) ^a 、硼(B)、铝(Al) ^a 、钛(Ti)、钒(V)、铬(Cr) ^a 、锰(Mn)、铁(Fe)、钴(Co) ^c 、镍(Ni) ^c 、铜(Cu)、锌(Zn)、砷(As) ^a 、硒(Se) ^d 、钼(Mo)、银(Ag)、镉(Cd) ^a 、锡(Sn)、锑(Sb)、钡(Ba)、汞(Hg) ^d 、铊(Tl)和铅(Pb) ^c
多环芳烃(PAHs)	萘(Nap) ^c 、芘(Per) ^c 、苊(Ace) ^d 、芴(Flu) ^d 、菲(Phe) ^d 、蒽(Ant) ^d 、荧蒽(Flt) ^d 、芘(Pyr) ^d 、苯并(a)蒽(BaA) ^c 、䓑(Chr) ^c 、苯并(b)荧蒽(BbF) ^c 、苯并(k)荧蒽(BkF) ^c 、苯并(a)芘(BaP) ^a 、二苯并(a,h)蒽(DahA) ^b 、苯并(g,h,i)芘(BghiP) ^d 和茚并(1,2,3-cd)芘(InP) ^c
邻-苯二甲酸酯(PAEs)	邻-苯二甲酸二甲酯(DMP)、邻-苯二甲酸二乙酯(DEP)、邻-苯二甲酸二异丁酯(DIBP)、邻-苯二甲酸二丁酯(DBP)、邻-苯二甲酸二甲氧乙酯(DMEP)、邻-苯二甲酸-2-4-甲基-2-戊酯(DMPP)、邻-苯二甲酸二乙氧基乙酯(DEEP)、邻-苯二甲酸二戊酯(DPTP)、邻-苯二甲酸二己酯(DHP)、邻-苯二甲酸丁基酯(BBP) ^d 、邻-苯二甲酸二丁氧基乙酯(DBMP)、邻-苯二甲酸二己酯(DCHP)、邻-苯二甲酸二乙基己酯(DEHP) ^e 、邻-苯二甲酸二苯酯(DPHP)、邻-苯二甲酸二正辛酯(DOP)和邻-苯二甲酸二壬酯(DNP)
挥发性有机物(VOCs)	甲苯 ^d 、氯苯、乙苯 ^c 、对二甲苯 ^d 、邻二甲苯 ^d 、苯乙烯、异丙苯、溴苯、1,1,2,2-四氯乙烷 ^c 、正丙苯、4-氯甲苯、2-氯甲苯、1,2,4-三甲苯、1,3,5-三甲苯、叔丁苯、仲丁苯、1,4-二氯苯 ^c 、4-异丙基甲苯异丙基甲苯、1,3-二氯苯 ^d 、正丁苯、1,2-二溴-3-氯丙烷 ^c 、1,2,4-三氯苯、六氯-1,3-丁二烯 ^d 和 1,2,3-三氯苯
抗生素(ANTs)	磺胺醋酰、磺胺嘧啶、磺胺甲恶唑 ^d 、磺胺噻唑、磺胺吡啶、磺胺甲基嘧啶、磺胺二甲异噻唑 ^d 、磺胺对甲氧嘧啶、磺胺二甲嘧啶 ^d 、磺胺二甲异嘧啶、磺胺间甲氧嘧啶、磺胺甲二唑、磺胺氯哒嗪、磺胺氯吡嗪、磺胺噻唑啉、磺胺二甲氧基嘧啶、诺氟沙星、头孢氨苄、氧氟沙星、氟苯西林、林可霉素、阿莫西林、克林霉素、四环素、强力霉素、盐酸土霉素、氯四环素、脱水红霉素、克拉霉素、罗红霉素、甲氧苄啶、洛美沙星、恩诺氟沙星、环丙沙星、阿奇霉素、氯霉素 ^b 、甲砒霉素、氟苯尼考、二氟沙星、氟罗沙星、马波沙星、培氟沙星、沙氟沙星、卡巴多、北里霉素、竹桃霉素、泰乐菌素、盐霉素、甲基盐霉素和莫能菌素
有机氯农药(OCPs)	α -六六六(α -HCH) ^c 、 β -六六六(β -HCH) ^c 、 γ -六六六(γ -HCH) ^c 、 δ -六六六(δ -HCH) ^c 、七氯(HC) ^c 、艾试剂(AD) ^b 、环氧七氯(HCE)、反式氯丹(γ -CD) ^c 、顺式氯丹(α -CD) ^c 、 α -硫丹(α -ES)、 <i>p,p'</i> -滴滴伊(DDE)、狄试剂(DD) ^b 、异狄试剂(ED) ^d 、 β -硫丹(β -ES)、 <i>p,p'</i> -滴滴涕(DDD)、异狄氏剂醛(EA)、硫丹硫酸盐(ESS)、 <i>p,p'</i> -滴滴涕(DDT) ^b 、异狄氏剂酮(EK)和甲氧氯(MC) ^d
多氯联苯(PCBs)	PCB 28、52、77 ^a 、81 ^a 、101、105、114、118、123 ^a 、126 ^a 、138、153、156 ^a 、157 ^a 、167 ^a 、169 ^a 、180 和 189 ^a

1) a 表示该物质被世界卫生组织国际癌症研究机构认定为 I 级致癌物; b 表示该物质为 II 级 A 类致癌物; c 表示该物质为 II 级 B 类致癌物; d 表示该物质为 III 类致癌物

PAHs、OCPs、PCBs 和 PAEs 的预处理过程参照文献[16]. 水样先经 GF/F 膜(450℃ 烘烤 4 h)过滤,用 4 mol·L⁻¹ 硫酸将 pH 调至 5~7,加入 100 ng 的 PAHs 内标(Ace-d₁₀, Phe-d₁₀, Flu-d₁₂, Per-d₁₂)和 10 ng 的 OCPs 和 PCBs 内标(四氯间二甲苯,TCMX),再用已活化的 Sep-Pak 固相萃取 C18 小柱(6 mL/500 mg)进行净化富集. C18 小柱依次用 10 mL 色谱纯甲醇和 10 mL 超纯水进行活化. 富集完成后,立即用 20 mL 色谱纯二氯甲烷进行洗脱. 洗脱液通过柔和氮吹吹至 1 mL,最后用 0.2 μm 的尼龙滤头过滤,保存在 1.5 mL 的棕色色谱瓶中并冷藏于 -18℃ 冰箱中,待上机测样.

ANTs 的前处理参照 Zhou 等^[17]的方法. 经 GF/F 滤膜过滤后的水样,加入适量的 4 mol·L⁻¹ 硫酸调节 pH 至 3,再加入 100 ng 内标. 为了提高四环素类抗生素的回收率,称取 0.4 g 的 Na₂EDTA 加入水样中,混匀至溶解,然后进行固相萃取. 固相萃取时,首先用 10 mL 色谱纯甲醇和 10 mL 超纯水对 Waters

固相萃取 HLB 小柱(6 mL/500 mg)进行净化富集. 待水样富集完成以后,用 10 mL 甲醇进行洗脱,洗脱液通过柔和氮吹吹至 1 mL,然后用 0.22 μm 的尼龙滤头过滤,贮存于 1.5 mL 的棕色色谱瓶中,在 -18℃ 的条件下保存待测.

HMs 的前处理: 取用 GF/F 膜过滤后的 15 mL 滤液,加入 100 μL 的硝酸(硝酸:水=1:1)进行酸化,充分摇匀后冷藏于 -18℃ 冰箱中,待上机测样.

1.3 污染物仪器分析

PAHs 的定量分析用高效液相色谱仪(Agilent 1200),检测器为二级管阵列检测器(DAD)串联荧光检测器(FLD);流动相为乙腈和水,流速保持在 1 mL·min⁻¹;分离柱为 PAHs Waters C18 柱(5 μm × 4.6 mm × 250 mm; Waters, USA),柱温为 25℃. 通过内外标法定量分析 16 种 PAHs,空白实验结果表明,整个检测过程中没有污染和干扰. PAHs 的回收率在 72%~105% 之间,方法检测限为 0.09~3.01 ng·L⁻¹.

OCPs 和 PCBs 是利用气相色谱仪 (Agilent 7890A), 配置⁶³Ni μ -ECD 检测器来定量检测. 仪器使用的分离柱是 DB-5MS 毛细管色谱柱 (J&W 30 m \times 0.25 mm \times 0.25 μ m); 载气为氦气, 采用恒流模式, 流速控制在 1.0 mL \cdot min⁻¹; 另外采用不分流的方式进样, 进样体积为 1 μ L. 通过内外标法定量分析 38 种 PCBs 和 OCPs, 空白实验结果表明, 整个检测过程中没有污染和干扰. OCPs 和 PCBs 的回收率分别在 78%~110% 和 67%~113% 之间, 方法检测限分别为 0.01~0.43 ng \cdot L⁻¹ 和 0.04~0.60 ng \cdot L⁻¹.

PAEs 是利用气相色谱仪 (Agilent 7890A), 配置火焰离子化检测器 (FID) 来定量检测. 仪器使用的是 HP-5MS 毛细管色谱柱 (Agilent 30 m \times 0.25 mm \times 0.25 μ m), 载气为氦气, 采用恒流模式, 流速控制在 1.0 mL \cdot min⁻¹, 进样体积为 1 μ L. 通过外标法对 PAEs 进行定量分析. 结果显示, 16 种 PAEs 方法检测限分别为 5.3~31.2 ng \cdot L⁻¹, 回收率为 71%~112%.

VOCs 是利用热电 DSQ 型气相色谱-质谱联用仪, 配置 VF-624 色谱柱 (30 m \times 0.25 mm \times 1.4 μ m) 和电子轰击离子源 (EI) 测定. 进样口温度 200 $^{\circ}$ C, 分流比为 50:1; 载气为氦气, 流量 1 mL \cdot min⁻¹. 电子轰击离子源 (EI) 的温度为 200 $^{\circ}$ C, 电子轰击能量 70 eV, 传输线温度为 280 $^{\circ}$ C, 发射电流 100 Ma, 预四级杆电压为 -7.8 V, 通过全扫描模

式, 外标法对 24 种 VOCs 进行定量分析, 方法检测限为 1.0~22.0 ng \cdot L⁻¹, 回收率为 76%~107%.

ANTs 均采用超高效液相色谱-质谱联用仪 (Waters ACQUITY UPLC-Waters Xevo TQD), 配置 BEH-C18 VanGuard 预柱 (5 mm \times 2.1 mm \times 1.7 μ m) 和 BEH-C18 (100 mm \times 2.1 mm \times 1.7 μ m) 色谱柱以及电喷雾离子化源 (ESI). 甲砒霉素、氟苯尼考和氯霉素在负模式下进行分析, 其他目标物质均在正模式下进行分析. 流动相流速为 0.45 mL \cdot min⁻¹; 柱温箱的温度设为 40 $^{\circ}$ C, 进样量为 5 μ L. 通过内外标法定量分析 51 种 ANTs, 方法检测限为 0.01~1.51 ng \cdot L⁻¹, 回收率为 38%~180%.

HMs 是通过电感耦合等离子体质谱仪 (ICP-MS) 测定, 方法检测限为 0.01~5.00 μ g \cdot L⁻¹. 金属元素标准储备液从美国 SPEX CertiPrep 公司购买. 所有物质的测定均在中国科学院南京地理与湖泊研究所湖泊与环境国家重点实验室分析测试中心完成.

1.4 优先污染物筛选

综合评分法是一种多指标、量化的筛选识别优先污染物的方法. 图 2 介绍了整个方法的流程及原理. 本方法设定了 5 种不同类型的评价标准: ① 污染物环境暴露 (O); ② 持久性 (P); ③ 生物积累性 (B); ④ 生态风险 (E); ⑤ 人体健康风险 (H).

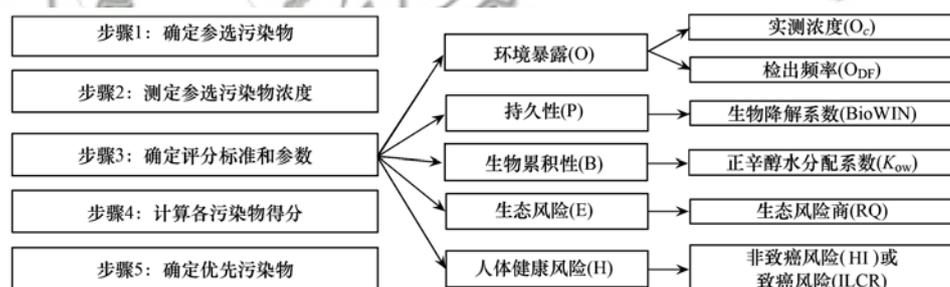


图 2 综合评分法的流程和原理

Fig. 2 Overall schematic of the comprehensive ranking system

污染物环境暴露 (O) 是基于污染物的环境实测浓度, 主要包括水体检出浓度 (O_c) 以及检出频率 (O_{DF}) 两个指标. 污染物的持久性 (P) 主要通过生物降解系数 (BioWIN) 来衡量. BioWIN 的值越小, 污染物的持久性越强. 另外, 正辛醇水分配系数 (K_{ow}) 用来评估污染物的生物积累性 (B). 所有参选污染物的 BioWIN 和 K_{ow} 值来源于美国环保署 (USEPA) 的 EPI Suite 软件^[18]. 生态风险 (E) 主要通过生态风险商 (RQ) 来衡量. 人体健康风险 (H) 主要通过于 USEPA 的综合风险信息系统中的健康风险模型来确定, 分别进行非致癌风险 (HI) 和致癌风险 (ILCR).

O_c 、 O_{DF} 、BioWIN、 K_{ow} 、RQ、HI 和 ILCR 分别按照等比级数的方法各划为 5 个等级, 然后按照 (2/3) 累计秩法进行赋分^[12], 每项标准满分 100 分. 在计算重要性权重时, 对于各标准赋予相等的权重以避免任何的人为判断偏差. 每种污染物的综合得分为 OPBEH 的得分之和.

优先污染物清单是按照综合得分由高到低的排序生成. 然后按照等比级数的方法将优先污染物划分为 6 个等级, 其中第 1 等级中的化合物为最高优先级污染物.

1.5 生态和人体健康风险

为明确升金湖水环境中污染物负荷对水生生态

系统可能造成的危害,需对水环境中的污染物赋存状况进行生态风险评价,参考欧盟技术导则中的风险商值法(RQ)对水环境中污染物的生态风险进行定量化表征^[19],RQ的计算公式如下:

$$RQ = MEC/PNEC$$

式中,MEC表示水体中污染物浓度($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$),PNEC表示该污染物的预测无效应浓度($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$).PAHs、OCPs、PAEs、PCBs和VOCs这5类污染物的PNEC主要通过物种敏感度分布法(SSD)来确定,通过SSD计算得到的 HC_5 值(保护95%物种的浓度)作为该物质的PNEC值.而HMs和ANTs这两类物质由于可用的毒性数据不足以完成SSD计算,则使用评估因子法(AF)来确定,即把最敏感物种的毒性数据和评估因子的比值作为PNEC值.物种的毒性数据主要通过USEPA的ECOSAR和ECOTOX获得^[19].

为探究升金湖水环境污染物是否会对人体健康产生损害作用,需要对水体污染物进行人体健康风险评价,参考USEPA的综合风险信息系统中的增量终生致癌风险(ILCR)和非致癌风险(HI)来定量表征^[9].致癌物质使用ILCR来评估污染物进入人体后的致癌风险,而对于非致癌物质,则使用HI来评估污染物进入人体后所产生的潜在风险.水体中的污染物进入人体的途径主要包括饮水摄入以及皮肤接触.若某一污染物经过多种暴露途径对人体产生影响,应考虑将其各种不同暴露途径的风险相加得到最终风险.HI和ILCR的计算公式如下:

$$HI = \frac{ADD_{\text{dri}}}{\text{RfD}_{\text{dri}}} + \frac{ADD_{\text{der}}}{\text{RfD}_{\text{der}}}$$

$$ILCR = ADD_{\text{dri}} \times \text{SF}_{\text{dri}} + ADD_{\text{der}} \times \text{SF}_{\text{der}}$$

式中, ADD_{dri} 和 ADD_{der} 分别为饮水和皮肤接触途径日暴露剂量[$\text{mg}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$]; RfD_{dri} 和 RfD_{der} 分别为饮水和皮肤暴露途径下的长期摄入参考剂量[$\text{mg}\cdot(\text{kg}\cdot\text{d})^{-1}$]; SF_{dri} 和 SF_{der} 分别为饮水和皮肤暴露途径下的致癌斜率因子[$(\text{kg}\cdot\text{d})\cdot\text{mg}^{-1}$].上述公式中所用的致癌斜率因子与非致癌物摄入参考剂量采用USEPA的综合风险信息资料^[9].

两种途径的日暴露剂量的计算公式如下:

$$ADD_{\text{dri}} = \frac{MEC \times IR \times EF \times ED}{BW \times AT}$$

$$ADD_{\text{der}} = \frac{MEC \times SA \times PC \times ET \times EF \times ED \times CF}{BW \times AT}$$

式中,MEC为水中污染物浓度($\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$);SA为皮肤接触表面积(cm^2);PC为化学物质皮肤渗透常数($\text{cm}\cdot\text{h}^{-1}$);CF为转换因子($\times 10^{-9}$);ET为暴露时间($\text{h}\cdot\text{d}^{-1}$);ED为暴露时段(a);EF为暴露频率

($350\text{d}\cdot\text{a}^{-1}$);BW为体重(kg);AT为平均暴露时间(d);IR为饮用水摄入量($\text{mL}\cdot\text{d}^{-1}$).各参数值的确定参考文献^[20]进行.

2 结果与讨论

2.1 升金湖水体化学品污染状况

升金湖水体7类有毒有害污染物的空间分布如图3所示.PAHs总量检出浓度为 $54.7 \sim 148.0\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$,平均浓度为 $(90.2 \pm 27.5)\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$.PAHs污染最严重的是中湖区的SJ10样点($148.0\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$),其次为上湖区SJ1样点($141.6\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$)^[图3(a)].从图1可以看出,这两个点位均位于河口附近,说明升金湖水体中的PAHs主要来源于流域地表径流的输入.与中国的其他湖泊相比(表2),升金湖的PAHs污染明显轻于南四湖、固城湖和东湖等.然而,升金湖PAHs浓度与鄱阳湖和洞庭湖浓度相当.这可能3个湖泊都属于国家级重要湿地,国家对湖泊周边流域工业、养殖业和旅游业进行了有效限制,PAHs排放量减少.

作为两类历史使用的污染物,升金湖水体中的OCPs和PCBs污染仍然普遍存在.OCPs和PCBs的检出浓度(范围及均值)分别为: $14.4 \sim 41.8\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ [$(19.8 \pm 7.1)\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$]和 $1.6 \sim 6.1\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ [$(3.6 \pm 1.4)\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$].升金湖水体OCPs和PCBs污染在空间分布呈现为上湖区>中湖区>下湖区的趋势^[图3(b)和3(c)].由于上湖区和中、下湖区之间有姜坝相隔,因此湖区污染物在坝前累积,浓度较高.由表2可知,升金湖的OCPs和PCBs污染明显要小于巢湖、太湖、南四湖、鄱阳湖和白洋淀.另外,升金湖水体浓度与洞庭湖的浓度相当,在全国范围内属于偏低的水平.

PAEs作为塑料软化剂和改性添加剂,在我国生产量大、使用范围广且接触人口众多,已成为水环境中污染最为广泛的有机污染物之一.在升金湖水体中,PAEs的浓度为 $1703.8 \sim 6058.9\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$,均值为 $(2813.0 \pm 1314.1)\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$.PAEs的空间分布显示^[图3(d)],中湖区SJ12的PAEs污染最为严重.DIBP和DEMP的浓度分别达到了 $4291.8\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $1089.0\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$.DIBP被广泛应用于农用薄膜、食品容器、儿童用品、化妆品、驱虫剂和其他消费品^[21].而DEMP在大多数塑料或聚合物材料和建筑材料中被发现^[22].升金湖中湖区主要是农业区,水体PAEs主要来自于农业薄膜和建筑材料.与其他湖泊比(表2),升金湖PAEs浓度明显小于太湖,而与巢湖PAEs浓度相当,且远高于鄱阳湖的PAEs污染水平.

VOCs 是重要的化工原料、中间体和有机溶剂, 它们广泛应用于化工、医药、农药和制革等行业, 过量摄入 VOCs 会对人体肝肾和肺功能以及生殖功能、免疫功能造成损害. 因此对升金湖水域的 25 种 VOCs 进行了检测, 检出浓度 (均值及范围) 为

(1 962.7 ± 1 718.3) ng·L⁻¹ (449.6 ~ 5 409.1 ng·L⁻¹) [图 3(e)]. 对于不同 VOCs 单体而言, 甲苯是浓度最高的 VOCs [(266.8 ± 72.7) ng·L⁻¹], 其次为 1,2,4-三氯苯和 1,2,3-三氯苯, 而 1,1,2,2-四氯乙烷检出浓度最低, 仅为 (1.5 ± 1.4) ng·L⁻¹. VOCs

表 2 中国湖泊水体各种有机污染物的浓度水平比较¹⁾/ng·L⁻¹

Table 2 Comparison of persistent organic pollutants in lake waters with other lakes/ng·L⁻¹

湖泊	PAHs	PAEs ^a	DDTs	HCHs	PCBs ^b	文献
升金湖	54.7 ~ 148.0(90.2)	988 ~ 5 613(2 025)	6.6 ~ 13.5(8.8)	0.4 ~ 4.0(1.4)	0.1 ~ 6.1(1.9)	本研究
洞庭湖	17.33 ~ 77.12(67.3)		0.1 ~ 2.1(1.3)	1.0 ~ 2.6(1.33)	0.5 ~ 2.8(1.1)	[23,24]
鄱阳湖	5.56 ~ 266.1	288 ~ 2 079(1 003)	2.31 ~ 33.4	4.4 ~ 59.7		[25,26]
巢湖	95.6 ~ 370.1(170.7)	370 ~ 13 200(1 790)	18.1 ~ 28.4(22.2)	14.0 ~ 44.0(25.7)		[27 ~ 29]
南四湖	4 ~ 3 530.0(973.7)		35 ~ 157(96)	13 ~ 195		[30,31]
固城湖	184 ~ 1 160					[32]
太湖	49.5 ~ 197.7	740 ~ 13 000(4 960)	1.0 ~ 84.6(15.5)	0.6 ~ 77.7(24.8)	0.9 ~ 5.9(3.5)	[33 ~ 35]
白洋淀	71.3 ~ 228.3		4.05 ~ 20.59	3.1 ~ 10.6	6.5 ~ 44.3	[36 ~ 38]
洪湖			0.3 ~ 5.5(1.6)	0.5 ~ 3.3(1.7)	0.2 ~ 10.9(4.5)	[24]
东湖	10.2 ~ 525.1				0.2 ~ 6.0	[39,40]
博斯腾湖	0.0 ~ 368.7(189.7)		0.7 ~ 40(5.8)	14.2 ~ 24.5(18.1)		[41]

1) a 表示 6 种 USEPA 优控 PAEs 浓度之和(DMP、DEP、DIBP、DBP、BBP 和 DEHP); b 表示 7 种 PCBs 指示物浓度之和(PCB 28、52、101、118、138、153 和 180); 括号里的值为各污染物的均值

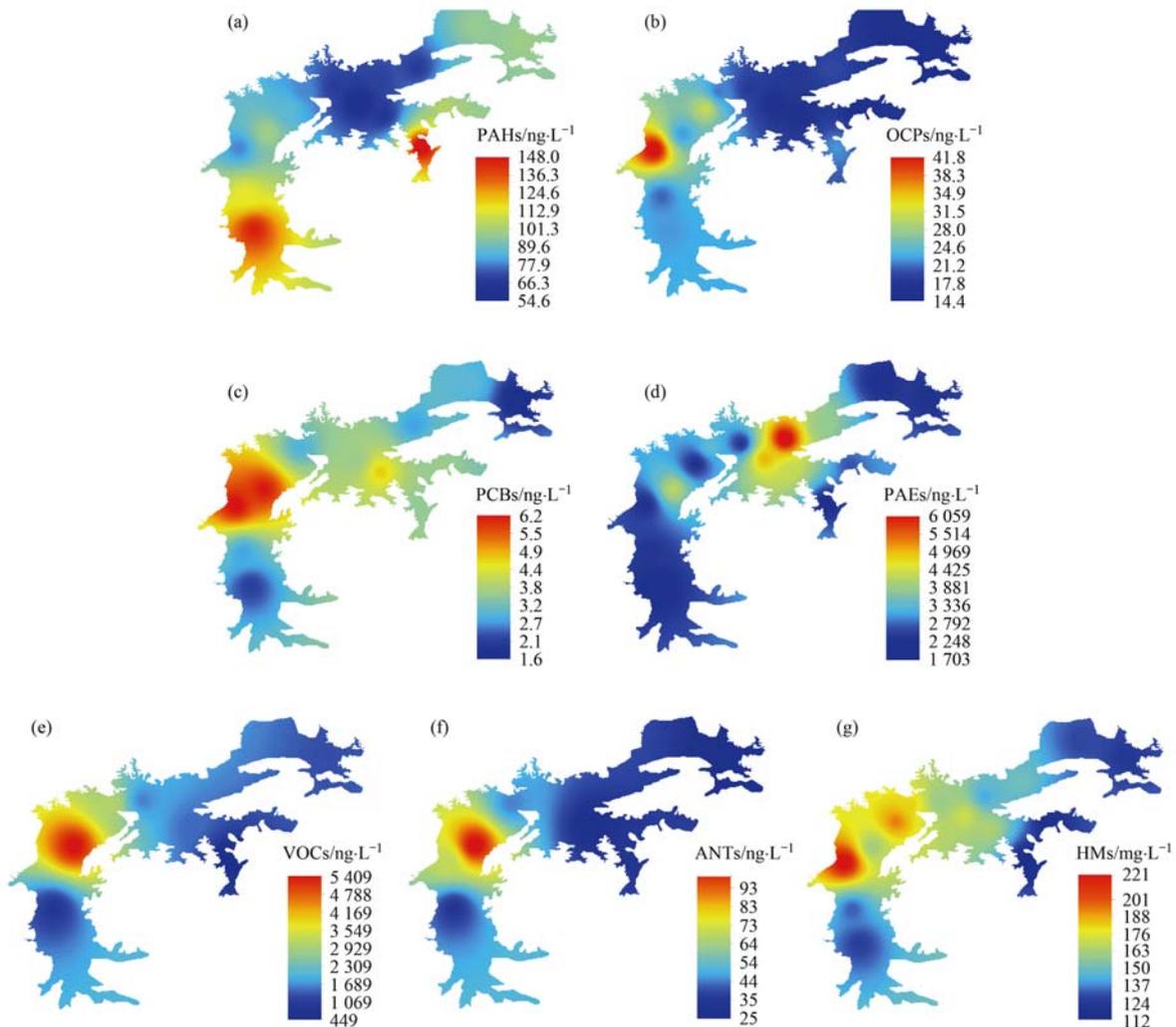


图 3 升金湖水体 7 类有毒有害污染物的空间分布

Fig. 3 Spatial distribution of seven target toxic pollutants in Shengjin Lake

污染最严重的点位是 SJ4, 1,2,3-三氯苯、1,2,4-三氯苯和 1,4-二氯苯的浓度甚至超过了 $400 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 苯系物是使用无铅汽油的汽车尾气的主要污染物^[42], 而 SJ4 位于松杨湖大桥附近, 每天往返大桥的车辆排放的尾气加剧了 VOCs 污染.

升金湖水体中 ANT 的总浓度范围为 $25.7 \sim 102.8 \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$, 平均浓度为 $(46.2 \pm 26.5) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ [图 3(f)]. 在 51 种检测 ANT 中, 升金湖检出 29 种, 其中卡巴多的检出浓度最高, 平均浓度为 $(11.8 \pm 8.6) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 卡巴多是一种兽用药物, 主要用于猪养殖过程中的细菌感染. 升金湖周边遍布畜禽养殖, 这可能是造成水体中卡巴多浓度较高的原因^[43]. 另外环丙沙星和四环素的浓度也达到了 $(6.3 \pm 4.0) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $(5.4 \pm 2.9) \text{ ng}\cdot\text{L}^{-1}$. 升金湖周边鱼虾养殖比较发达, 四环素在水产养殖中用量大^[44]. 而环丙沙星是第三代喹诺酮类抗菌药物, 可以很好地抵抗敏感菌株所致的各种感染, 广泛应用于人类医疗中^[45]. 因此, 这两种抗生素通过地表径流进入升金湖造成了湖泊水体污染.

23 种金属元素在升金湖水体中共检出 18 种, 其中 Ba 元素浓度最高, 浓度为 $40.0 \sim 82.2 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 均值为 $(59.8 \pm 15.6) \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. 其次为 Fe 和 Al 元素, 浓度均值分别为 $(11.6 \pm 8.0) \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和 $(11.1 \pm 5.4) \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$. 对于地表水环境质量标准 (GB 3838-2002) 中的 8 种重金属而言, 浓度由高到低的排序为: $\text{Zn}(2.96 \sim 17.02 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}) > \text{Cu}(1.08$

$\sim 2.53 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}) > \text{As}(0.79 \sim 1.36 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}) > \text{Cr}(0.35 \sim 0.61 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}) > \text{Pb}(0.05 \sim 0.16 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}) > \text{Cd}(0 \sim 0.01 \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1})$. 另外 Se 和 Hg 元素在各点位中均未检出. 升金湖金属元素的空间分布规律与 PCBs 相似, 在上湖区的坝前污染最重这可能与污染物在坝前大量累积有关.

2.2 升金湖水体优先污染物识别

为了从众多的化学品中筛选识别危害严重的优先污染物, 本研究建立了一种基于多指标参数的综合评分方法, 如图 4 所示. 在 168 种参评污染物中, 有 118 种物质在升金湖水体中被检出, 其综合得分均大于 0. 按照等比级数的方法将这 118 种物质分为了 6 个等级; 等级 1 一共包含 25 种污染物, 定义为高优先级污染物 (HP). 等级 2 一共包含 53 种污染物, 定义为中优先级污染物 (MP). 等级 3 ~ 等级 6 一共包含 40 种物质, 定义为低优先级污染物 (LP). 而综合得分为 0 的 50 种物质定义为无优先级污染物 (NP). 由图 4(a) 可知, 74% 的 PAEs、69% 的 HMs 和 60% 的 OCPs 属于高或者中优先级污染物, 而 96% 的抗生素属于低或无优先级污染物. 另外 56% 的 PAHs、79% 的 VOCs 和 39% 的 PCBs 属于中优先级污染物. 因此, 在升金湖水体中, 最需要优先控制的是 PAEs、HMs 和 OCPs, 其次为 PCBs、PAHs 和 VOCs.

图 4(b) 显示了升金湖水体中所有高优先级污染物, 分别为 7 种 PAEs, 6 种 HMs, 7 种 OCPs, 3 种

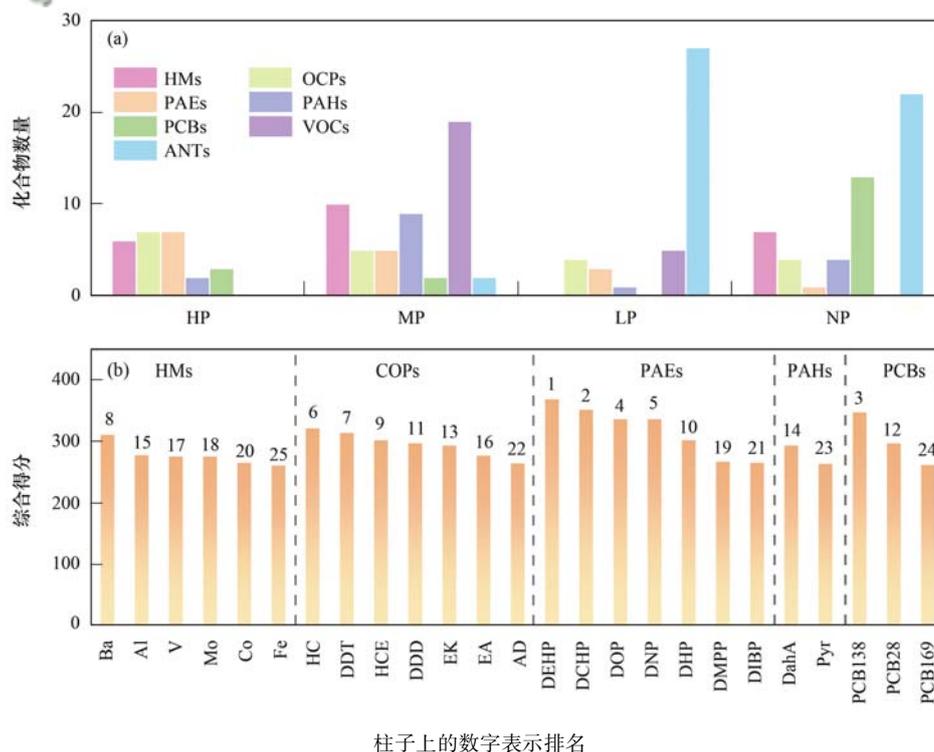


图 4 升金湖水体中各类污染物在优先组中的分布和高优先级污染物的组成

Fig. 4 Distribution of target toxic pollutants in priority groups and the composition of high-priority pollutants

PCBs 和 2 种 PAHs. 其中综合得分最高的 10 种物质得分由高到低排序为: DEHP > DCHP > PCB138 > DOP > DNP > HC > DDT > Ba > HCE > DHP. 如图 5 所示, 邻-苯二甲酸酯中的 DEHP 和 DCHP 是得分最高的两种污染物. 尽管两种物质在环境中的持久性不如其他优先污染物强, 但是其环境检出浓度高、生物积累强以及对人体健康影响大^[28], 所以是最需要优先控制的两种污染物. 另外, 邻-苯二甲酸酯中

的 DOP、DNP 和 DHP 得分也较高, 排名第 4、第 5 和第 10. 尽管 PCB138、HC、HCE 和 DDT 在升金湖流域已经不再使用, 环境检出浓度较低, 但是其持久性和对生态和人体健康影响得分都不可忽视^[46], 仍然是高优先级污染物. 重金属 Ba 主要用于制铜时的除氧剂, 颜料和烟花制造, 对人体可能造成胃肠道刺激和低钾血症^[47], 也是需要优先控制污染物之一.

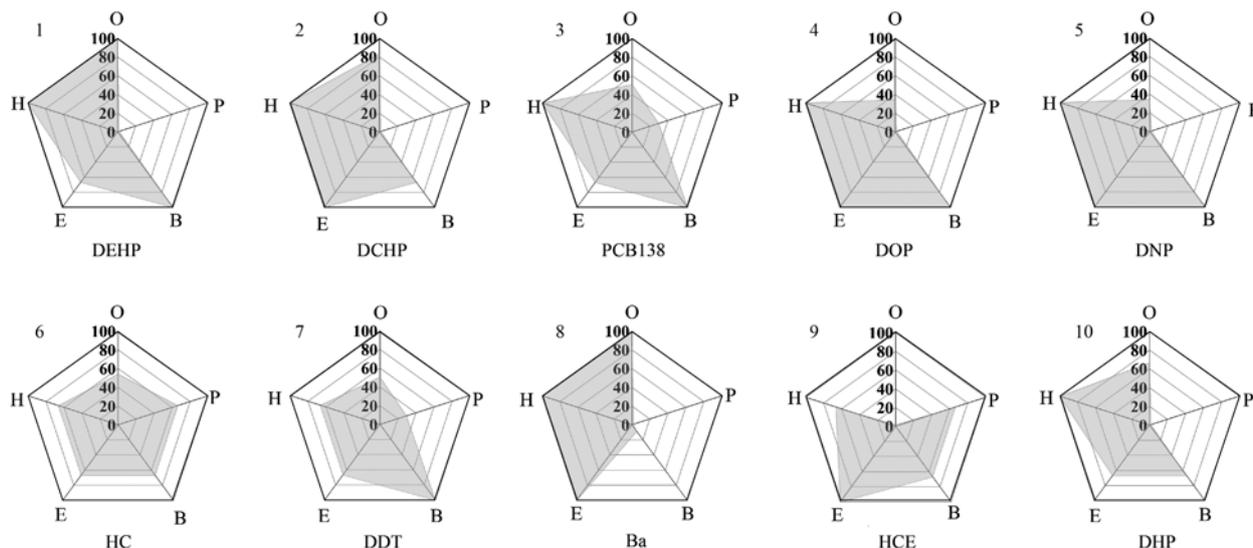


图 5 基于综合评分法的排名前 10 的优先污染物及其得分组成

Fig. 5 Top ten priority pollutants and their composition scores based on the comprehensive ranking system

在高优先级污染物清单中, PAEs 中的 DEHP 和 DOP 被纳入了 USEPA 优先污染物清单, 并且 DEHP 同时也被纳入了中国饮用水水质检测指标^[10]. 作为世界的工厂, 中国每年生产 7.39×10^7 t 塑料的同时也使用了 2×10^6 t 的塑化剂^[48]. DEHP、DCHP 和 DOP 等大分子量的 PAEs 广泛使用于高分子工业, 建筑材料和家居用品^[49], 而 DIBP 和 DMPP 则主要用于聚氯乙烯材料(PVC)和农用塑料薄膜等^[22]. 升金湖湿地周边主要为农业区, 应加强流域废弃塑料、农用膜和建筑垃圾的回收和管理, 从而减缓 PAEs 的污染. 升金湖所有检出的 OCPs 和 PCBs 优先污染物都在 USEPA 的优先污染物清单里, 也被列入了中国环境优先污染物黑名单^[50]. 这些物质虽然不再生产, 但是它们的半衰期长, 对人体和生物的毒性高, 其在生物体内的羟基代谢物, 仍具有较强的蓄积性和激素干扰效应^[14]. 因此, 可以在污染重的区域(比如上湖区的 SJ4 和 SJ5)开展生物修复, 减少历史性污染物对环境的危害. PAHs 中的 DahA 和 Pyr 也在 USEPA 优先污染物名单中, 并且都是世界卫生组织国际癌症研究机构认定为 II 和 III 级致癌物. Pyr 主要来源于煤炭燃烧, 而 DahA 主要来源于交通尾气排放^[16]. 因此, 升金湖流域需要从源头管控, 减少

PAHs 污染. 比如, 使用清洁能源代替煤炭, 提高机动车尾气排放标准, 提倡使用新能源车等来减少 PAHs 排放. 尽管 VOCs 和 ANTs 属于中低优先级污染物, 但是由于工业快速发展以及人类和动物医疗水平的提高, VOCs 和抗生素的排放量逐年增加, 仍需关注其在环境中的浓度变化. 同时也需进一步提高医疗废水处理能力, 减少抗生素排放, 提升化工企业废气排放处理和机动车尾气排放标准以减少 VOCs 的排放.

2.3 升金湖水体优先污染物风险评价

基于综合评分法, 本研究筛选了 25 种高优先级污染物, 并对其进行了生态风险评估. 如图 6 所示, Ba、Fe、DNP、DOP 和 DCHP 的 RQ 值超过 10, 表现为超高生态风险. Co、DahA、Al、Mo、HCE、V 和 DDD 的 RQ 值在 1~10 之间, 表现为高生态风险. 而 DIBP、DMPP、DHP 和 DDT 的 RQ 值在 0.1~1 之间, 也可能存在生态风险. 而 EK、EA、EA 和 PCB169 目前的检出浓度暂时不存在生态风险. 尽管 DEHP 和 Pyr 的环境检出浓度较高, 但是由于其较大的 PENC 值, 其生态风险较低^[51]. 另外, 本研究也对升金湖不同点位的综合生态风险进行了评估, RQ 在 4.3~15.9 之间(图 7), 说明升金湖优

先污染物存在严重的生态风险. 对于不同湖区而言, 上湖区的污染高于中湖区, 而下湖区的生态风险最低. 作为国家级自然保护区, 升金湖需要优化

其流域的产业结构, 提升污染物去除工艺, 减少流域污染物的输入, 以保护濒危候鸟和其他生物的多样性和栖息地.

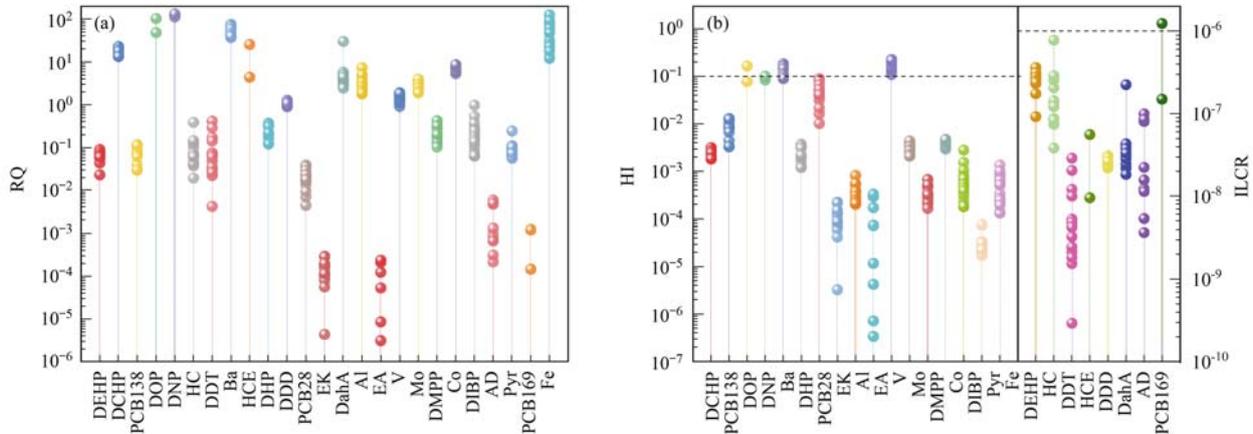


图 6 升金湖高优先级污染物的生态风险和健康风险

Fig. 6 Ecological and human health risk assessment of high-priority pollutants in Shengjin Lake

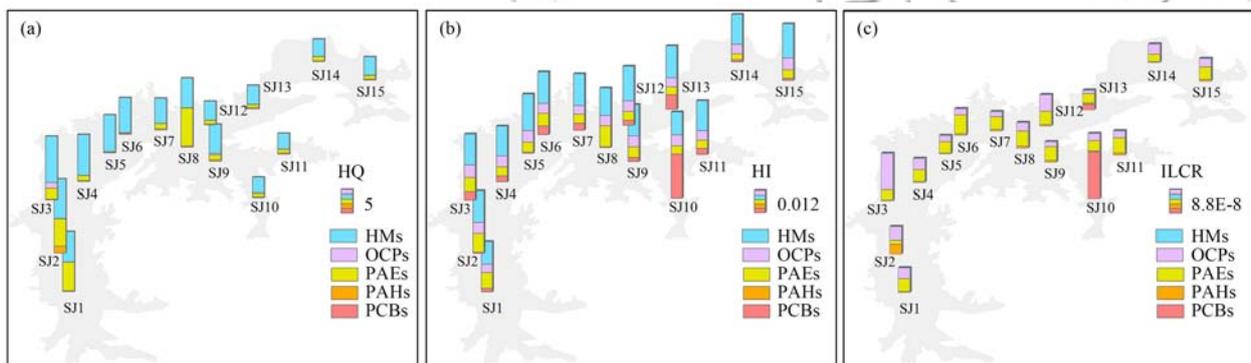


图 7 升金湖水体各点位的综合生态风险和健康风险

Fig. 7 Distribution and composition of ecology and human health risks in Shengjin Lake

在 25 种高优先级污染物中, 包含了 8 种 I 和 II 级致癌污染物以及 17 种非致癌污染物. 根据 USEPA 的定义, 非致癌污染物的 HI 超过 1 时, 表示一定会对人体健康造成危害, 而 HI 在 $0.1 \sim 1$ 之间时, 表示可能会对人体健康造成危害^[34]. 如图 6 所示, 升金湖水体的 Ba、V、DOP 和 DNP 的浓度可能会对对人体健康造成影响. 不同点位之间 HI 差异较小, 并且 HMs 非致癌风险最大, 其次为 PAEs 和 OCPs (图 7). 对于致癌污染物而言, 除 SJ10 点位的 PCB169 的 ILCR 在 $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4}$ 之间, 可能存在致癌风险以外, 其他致癌污染物通过饮水和皮肤暴露途径造成的致癌风险均小于 USEPA 致癌风险的推荐值 (1×10^{-6}). 对于不同类化合物而言, OCPs 和 PAEs 的致癌风险最高, 而 HMs 的致癌风险可以忽略不计.

2.4 综合评分法应用展望

近几十年来, 由于工农业的迅速发展, 数千种化学品进入了商业、工业、农业以及人们的日常生

活. 如此众多的化学品在促进了人类社会发展的同时也带来了严重的环境污染问题. 由于化学品数量巨大无法对其进行全面调查和监测, 而只能针对性地筛查出危害严重的污染物进行优先管控^[52]. 因此, 在已有研究基础上, 本研究优化建立了一种多参数综合评分法, 旨在根据实测环境浓度, 囊括化合物毒性基本参数及受纳水环境生态及人体健康风险, 采用科学权重赋分方法, 建立湖泊特定的优先污染物清单, 评估化学品对湖泊生态系统和流域人类健康的潜在风险.

与 20 世纪 80 年代建立的中国水体优先控制污染物黑名单 (黑名单)^[53] 相比, 本研究建立的优先污染物清单不仅涵盖了已有黑名单中的 PCBs 和 OCPs 等历史性污染物, 以及持续排放的部分 PAHs 和挥发性卤代烃, 还包含了多种尚未被列入黑名单的 PAEs、PAHs 和 VOCs 类化合物, 新兴污染物 ANT 则未被列入. 近几十年来, 中国成为塑料使用第一大国, PAEs 广泛用于 PVC 材料以及塑料薄膜中, 并且

可以通过生物富集和饮水进入人体,造成内分泌紊乱^[10].另外,由于近年来能源和工业结构转变,更多种类的 PAHs 和 VOCs 进入水环境,比如 Pyr、DahA 和 1,2,4-三氯苯等^[16,54].基于此,目前我国的黑名单已不能满足现有的污染物防控需要^[53],需要及时和定期更新.此外,不同区域人类活动强度和社会发展程度差异导致各区域化学品生产、使用和排放差异巨大^[55,56],受纳地表水体流域污染输入过程及生态系统服务功能同样存在较大差别,不同地区的湖泊亟需基于环境实测浓度、污染物危害性及生态和健康风险等参数,建立相应的优先污染物清单,实现“一湖一清单”,进而形成适合我国国情和社会发展的、以保护水生生物和人类健康为最终目标的优控污染物水质基准,结合污染物溯源分析,为科学、合理制定湖泊-流域污染物管控及削减方案提供方法支撑和科学依据.

3 结论

(1)升金湖上湖水体中 OCPs、PAEs、VOCs 和 ANTs 污染明显比中、下两湖严重,与污染物坝前累积效应有关,入湖河口区 PAHs 污染程度较高.升金湖中湖区主要是农业区,大量的农用薄膜的使用是湖区内 PAEs 污染负荷较高的主要原因.

(2)基于 OPBEH 多参数的综合评分法对升金湖水体 7 大类 168 种化合物中优先污染物筛选识别表明:DEHP、DCHP、PCB138、DOP、DNP、HC、DDT、Ba、HCE 和 DHP 是优先顺序前 10 的清单化合物种类,不同类别优先顺序表现为:PAEs、HMs 和 OCPs 属于高优先级,PCBs、PAHs 和 VOCs 为中优先级,抗生素 ANT 的优先级别最低.

(3)升金湖水体优先污染物存在较高的生态风险.化合物 HMs 类别所致非致癌风险系数最高,其次为 PAEs 和 OCPs,其中单体化合物 Ba、V、DOP 和 DNP 等通过饮水及皮肤接触暴露对人体健康存在较高的非致癌风险.升金湖水体优先污染物目前对人体暴露的致癌风险可以忽略.

参考文献:

- [1] 程元启,曹垒,马克·巴特,等.安徽升金湖国家级自然保护区 2008/2009 年越冬水鸟调查报告[M].合肥:中国科学技术大学出版社,2009.16-20.
- Cheng Y Q, Cao L, Barter M, et al. Wintering waterbird survey at the Anhui Shengjin Lake national nature reserve, China 2008/2009[M]. Hefei: University of Science and Technology of China Press, 2009. 16-20.
- [2] Cheng L J, Xue B, Yao S C, et al. Response of Cladocera fauna to environmental change based on sediments from Shengjin Lake, a Yangtze River-connected lake in China[J]. Quaternary International, 2020, **536**: 52-59.
- [3] Liu J L, Xue B, Yao S C, et al. Stable carbon isotope signatures of cellulose in macrophytes collected from three eutrophic lakes in China[J]. Limnologia, 2020, **81**, doi: 10.1016/j.limno.2020.125758.
- [4] 曹磊,潘晨,王晓辉.升金湖流域环境保护与生态建设研究[J].广东化工,2018, **45**(5): 198-199.
- Cao L, Pan C, Wang X H. Study on environmental protection and ecological construction in Shengjinhu Lake Basin [J]. Guangdong Chemical Industry, 2018, **45**(5): 198-199.
- [5] 贾艳艳,唐晓岚,唐芳林,等.基于人工景观格局变化的升金湖自然保护区空间近邻效应研究[J].山东农业大学学报(自然科学版),2020, **51**(5): 863-869.
- Jia Y Y, Tang X L, Tang F L, et al. Study on spatial neighbor effect of Shengjin Lake Nature Reserve based on the artificial landscape pattern change[J]. Journal of Shandong Agricultural University(Natural Science Edition), 2020, **51**(5): 863-869.
- [6] 叶小华,李铁松,夏训峰,等.升金湖湿地生态系统服务价值评估[J].三峡环境与生态,2009, **2**(4): 1-4.
- Ye X H, Li T S, Xia X F, et al. Evaluation of ecosystem services in Shengjin Lake wetland nature reserve [J]. Environment and Ecology in the Three Gorges, 2009, **2**(4): 1-4.
- [7] 何祥亮,许克祥.池州市升金湖流域生态环境保护规划研究[J].安徽农业科学,2018, **46**(12): 57-60.
- He X L, Xu K X. Research on the ecological environmental protection planning of Shengjin Lake basin in Chizhou City[J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2018, **46**(12): 57-60.
- [8] 张明真,周军,葛方,等.升金湖国家级自然保护区湖泊沉积物重金属分布及污染评价[J].生态科学,2019, **38**(1): 9-16.
- Zhang M Z, Zhou J, Ge F, et al. Distribution and contamination evaluation of heavy metals in the sediments from Shengjin Lake national nature reserve[J]. Ecological Science, 2019, **38**(1): 9-16.
- [9] He Y, Yang C, He W, et al. Nationwide health risk assessment of juvenile exposure to polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the water body of Chinese lakes [J]. Science of the Total Environment, 2020, **723**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.138099.
- [10] Li Y Y, He W, Liu W X, et al. Impacts of anthropogenic activities on spatial variations of phthalate esters in water and suspended particulate matter from China's lakes [J]. Science of the Total Environment, 2020, **724**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.138281.
- [11] Li C C, Huo S L, Yu Z Q, et al. National investigation of semi-volatile organic compounds (PAHs, OCPs, and PCBs) in lake sediments of China: Occurrence, spatial variation and risk assessment [J]. Science of the Total Environment, 2017, **579**: 325-336.
- [12] 王一喆,张亚辉,赵莹,等.国内外环境优先污染物筛选排序方法比较[J].环境工程技术学报,2018, **8**(4): 456-464.
- Wang Y Z, Zhang Y H, Zhao Y, et al. Comparison on screening and sorting methods of environmental priority pollutants at home and abroad [J]. Journal of Environmental Engineering Technology, 2018, **8**(4): 456-464.
- [13] Zhang Y Q, Johnson A C, Su C, et al. Which persistent organic pollutants in the rivers of the Bohai Region of China represent the greatest risk to the local ecosystem? [J]. Chemosphere, 2017, **178**: 11-18.
- [14] 刘臣辉,付玲玲,申雨桐,等.欧盟水框架指令优先污染物筛选方法的应用[J].环境工程,2015, **33**(10): 126-129.
- Liu C H, Fu L L, Shen Y T, et al. The application of a

- prioritization exercise for the European Water Framework Directive[J]. *Environmental Engineering*, 2015, **33**(10): 126-129.
- [15] 张桃, 周立志, 陆胤昊, 等. 升金湖国家级自然保护区湿地生态系统服务价值的动态变化[J]. *安徽农业大学学报*, 2018, **45**(5): 909-915.
Zhang T, Zhou L Z, Lu Y H, *et al.* Dynamic ecosystem service value in the wetland of Shengjin Lake National Nature Reserve [J]. *Journal of Anhui Agricultural University*, 2018, **45**(5): 909-915.
- [16] Zhao Z H, Gong X H, Zhang L, *et al.* Riverine transport and water-sediment exchange of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) along the middle-lower Yangtze River, China [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2021, **403**, doi: 10.1016/j.jhazmat.2020.123973.
- [17] Zhou L J, Li J, Zhang Y D, *et al.* Trends in the occurrence and risk assessment of antibiotics in shallow lakes in the lower-middle reaches of the Yangtze River basin, China[J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, **183**, doi: 10.1016/j.ecoenv.2019.109511.
- [18] Li Y, Zhang L Y, Ding J, *et al.* Prioritization of pharmaceuticals in water environment in China based on environmental criteria and risk analysis of top-priority pharmaceuticals[J]. *Journal of Environmental Management*, 2020, **253**, doi: 10.1016/j.jenvman.2019.109732.
- [19] Li Y, Zhang L Y, Liu X S, *et al.* Ranking and prioritizing pharmaceuticals in the aquatic environment of China[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **658**: 333-342.
- [20] 环境保护部. 中国人群暴露参数手册[M]. 北京: 中国环境出版社, 2013.
Ministry of Environmental Protection. Exposure factors handbook of chinese population [M]. Beijing: China Environment Press, 2013.
- [21] di Lorenzo M, Forte M, Valiante S, *et al.* Interference of dibutylphthalate on human prostate cell viability [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2018, **147**: 565-573.
- [22] Rocha B A, Asimakopoulos A G, Barbosa Jr F, *et al.* Urinary concentrations of 25 phthalate metabolites in Brazilian children and their association with oxidative DNA damage[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **586**: 152-162.
- [23] Wang C L, Zou X Q, Zhao Y F, *et al.* Distribution, sources, and ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the water and suspended sediments from the middle and lower reaches of the Yangtze River, China[J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2016, **23**(17): 17158-17170.
- [24] Wei L F, Tadesse A W, Wang J. Organohalogenated Contaminants (OHCs) in surface sediments and water of East Dongting Lake and Hong Lake, China [J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2019, **76**(2): 157-170.
- [25] Ai S H, Gao X Y, Wang X N, *et al.* Exposure and tiered ecological risk assessment of phthalate esters in the surface water of Poyang Lake, China[J]. *Chemosphere*, 2021, **262**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.127864.
- [26] Zhi H, Zhao Z H, Zhang L. The fate of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and organochlorine pesticides (OCPs) in water from Poyang Lake, the largest freshwater lake in China [J]. *Chemosphere*, 2015, **119**: 1134-1140.
- [27] 姜珊, 孙丙华, 徐彪, 等. 巢湖主要湖口水体和表层沉积物中有机氯农药的残留特征及风险评价[J]. *环境化学*, 2016, **35**(6): 1228-1236.
- Jiang S, Sun B H, Xu B, *et al.* Characteristics and risk assessment of organochlorine pesticides in water and surface sediment from main estuaries of Chaohu Lake[J]. *Environmental Chemistry*, 2016, **35**(6): 1228-1236.
- [28] He Y, Wang Q M, He W, *et al.* The occurrence, composition and partitioning of phthalate esters (PAEs) in the water-suspended particulate matter (SPM) system of Lake Chaohu, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **661**: 285-293.
- [29] Qin N, He W, Kong X Z, *et al.* Distribution, partitioning and sources of polycyclic aromatic hydrocarbons in the water-SPM-sediment system of Lake Chaohu, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, **496**: 414-423.
- [30] Zhang G Z, Pan Z K, Wang X M, *et al.* Distribution and accumulation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the food web of Nansi Lake, China[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2015, **187**, doi: 10.1007/s10661-015-4362-4.
- [31] 葛冬梅, 韩宝平, 郑曦. 微山水体中有机氯农药的分布及风险评价[J]. *安徽农业科学*, 2010, **38**(22): 11987-11989, 12024.
Ge D M, Han B P, Zheng X. Research on the distribution of organochlorine pesticide in the Weishan Lake and its risk evaluation[J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2010, **38**(22): 11987-11989, 12024.
- [32] Zeng Q F, Jeppesen E, Gu X H, *et al.* Distribution, fate and risk assessment of PAHs in water and sediments from an aquaculture-and shipping-impacted subtropical lake, China[J]. *Chemosphere*, 2018, **201**: 612-620.
- [33] 程加德, 任晓鸣, 邱阳, 等. 太湖上游多氯联苯的分布、来源及风险评价[J]. *生态环境学报*, 2020, **29**(12): 2433-2440.
Cheng J D, Ren X M, Qiu Y, *et al.* Distribution, source and risk assessment of PCBs in the upstream of Taihu Lake basin[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2020, **29**(12): 2433-2440.
- [34] Gao X Y, Li J, Wang X N, *et al.* Exposure and ecological risk of phthalate esters in the Taihu Lake basin, China [J]. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 2019, **171**: 564-570.
- [35] Zhao Z H, Zhang L, Deng J M, *et al.* The potential effects of phytoplankton on the occurrence of organochlorine pesticides (OCPs) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in water from Lake Taihu, China[J]. *Environmental Science; Processes & Impacts*, 2015, **17**(6): 1150-1156.
- [36] 高秋生, 焦立新, 杨柳, 等. 白洋淀典型持久性有机污染物污染特征与风险评估[J]. *环境科学*, 2018, **39**(4): 1616-1627.
Gao Q S, Jiao L X, Yang L, *et al.* Occurrence and ecological risk assessment of typical persistent organic pollutants in Baiyangdian Lake[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(4): 1616-1627.
- [37] 王乙震, 张俊, 周绪申, 等. 白洋淀多环芳烃与有机氯农药季节性污染特征及来源分析[J]. *环境科学*, 2017, **38**(3): 964-978.
Wang Y Z, Zhang J, Zhou X S, *et al.* Seasonal pollution characteristics and source identification of polycyclic aromatic hydrocarbons and organochlorine pesticides in surface water of Baiyangdian lake[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(3): 964-978.
- [38] Dai G H, Liu X H, Liang G, *et al.* Distribution of organochlorine pesticides (OCPs) and poly chlorinated biphenyls (PCBs) in surface water and sediments from Baiyangdian Lake in

- North China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2011, **23** (10): 1640-1649.
- [39] Yun X Y, Yang Y Y, Liu M X, *et al.* Distribution, seasonal variations, and ecological risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the East Lake, China [J]. *Clean-Soil, Air, Water*, 2016, **44**(5): 506-514.
- [40] Yun X Y, Yang Y Y, Liu M X, *et al.* Concentrations and risk assessment of polychlorinated biphenyls and polybrominated diphenyl ethers in surface sediments from the East Lake, China [J]. *Ecotoxicology*, 2015, **24**(1): 172-180.
- [41] Shen B B, Wu J L, Zhao Z H. Organochlorine pesticides and polycyclic aromatic hydrocarbons in water and sediment of the Bosten Lake, Northwest China[J]. *Journal of Arid Land*, 2017, **9**(2): 287-298.
- [42] 高秋生, 赵永辉, 焦立新, 等. 白洋淀水体挥发性有机物污染特征与风险评价[J]. *环境科学*, 2018, **39**(5): 2048-2055.
- Gao Q S, Zhao Y H, Jiao L X, *et al.* Pollution characteristics and health risk assessment of volatile organic compounds in Baiyangdian Lake[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(5): 2048-2055.
- [43] 郑玲, 吴玉杰, 赵永锋, 等. 高效液相色谱-串联质谱法测定动物源食品中啉乙醇与卡巴氧残留量[J]. *分析测试学报*, 2014, **33**(1): 21-26.
- Zheng L, Wu Y J, Zhao Y F, *et al.* Determination of olaquinox and carbadox residues in animal originated food by high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. *Journal of Instrumental Analysis*, 2014, **33**(1): 21-26.
- [44] Kong M, Bu Y Q, Zhang Q, *et al.* Distribution, abundance, and risk assessment of selected antibiotics in a shallow freshwater body used for drinking water, China [J]. *Journal of Environmental Management*, 2021, **280**, doi: 10.1016/j.jenvman.2020.111738.
- [45] 丁剑楠, 刘舒娇, 邹杰明, 等. 太湖表层水体典型抗生素时空分布和生态风险评价[J]. *环境科学*, 2021, **42**(4): 1811-1819.
- Ding J N, Liu S J, Zhou J M, *et al.* Spatiotemporal distributions and ecological risk assessments of typical antibiotics in surface water of Taihu Lake[J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(4): 1811-1819.
- [46] Gong X H, Li Q Y, Zhang L, *et al.* The occurrence of organochlorine pesticides (OCPs) in riverine sediments of hilly region of southern China: implications for sources and transport processes[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2020, **216**, doi: 10.1016/j.gexplo.2020.106580.
- [47] 帅星, 谢家理. 工业废水中钡的排放限值研究[J]. *环境保护科学*, 2011, **37**(4): 10-12, 21.
- Shuai X, Xie J L. Study on emission limits for Barium in industrial wastewater [J]. *Environmental Protection Science*, 2011, **37**(4): 10-12, 21.
- [48] Guo Y, Kannan K. Comparative assessment of human exposure to phthalate esters from house dust in China and the United States [J]. *Environmental Science & Technology*, 2011, **45**(8): 3788-3794.
- [49] Yang Q, Huang X L, Wen Z D, *et al.* Evaluating the spatial distribution and source of phthalate esters in the surface water of Xingkai Lake, China during summer[J]. *Journal of Great Lakes Research*, 2021, **47**, doi: 10.1016/j.jglr.2021.01.001.
- [50] 于云江, 付益伟, 孙朋, 等. 松花江吉林市江段水体特征污染物筛选研究[J]. *环境卫生学杂志*, 2013, **3**(3): 175-181, 185.
- Yu Y J, Fu Y W, Sun P, *et al.* Screening analysis of the characteristic pollutants in Songhua River in Jilin City [J]. *Journal of Environmental Hygiene*, 2013, **3**(3): 175-181, 185.
- [51] Zhou Y Q, Meng J, Zhang M, *et al.* Which type of pollutants need to be controlled with priority in wastewater treatment plants: traditional or emerging pollutants? [J]. *Environment International*, 2019, **131**, doi: 10.1016/j.envint.2019.104982.
- [52] Guillén D, Ginebreda A, Farré M, *et al.* Prioritization of chemicals in the aquatic environment based on risk assessment: analytical, modeling and regulatory perspective [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, **440**: 236-252.
- [53] 周文敏, 傅德黔, 孙宗光. 中国水中优先控制污染物黑名单的确定[J]. *环境科学研究*, 1991, **4**(6): 9-12.
- Zhou W M, Fu D Q, Sun Z G. Determination of black list of China's priority pollutants in water [J]. *Research of Environmental Sciences*, 1991, **4**(6): 9-12.
- [54] Man H Y, Liu H, Niu H, *et al.* VOCs evaporative emissions from vehicles in China: species characteristics of different emission processes [J]. *Environmental Science and Ecotechnology*, 2020, **1**, doi: 10.1016/j.ese.2019.100002.
- [55] 梁小明, 孙西勃, 徐建铁, 等. 中国工业源挥发性有机物排放清单[J]. *环境科学*, 2020, **41**(11): 4767-4775.
- Liang X M, Sun X B, Xu J T, *et al.* Industrial volatile organic compounds (VOCs) emission inventory in China [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(11): 4767-4775.
- [56] Han J, Liang Y S, Zhao B, *et al.* Polycyclic aromatic hydrocarbon(PAHs) geographical distribution in China and their source, risk assessment analysis [J]. *Environmental Pollution*, 2019, **251**: 312-327.

CONTENTS

Continuous PM _{2.5} Composition Measurements for Source Apportionment During Air Pollution Events	CAI Fan-tao, SHANG Yue, DAI Wei, <i>et al.</i> (4575)
Orographic Influences on the Spatial Distribution of PM _{2.5} on the Fen-Wei Plain	HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, SUN Cong-jian, <i>et al.</i> (4582)
Characteristics and Health Risk Assessment of Heavy Metals in PM _{2.5} Under Winter Haze Conditions in Central China: A Case Study of Huanggang, Hubei Province	LI Xing-yu, MAO Yao, CHEN Zhan-le, <i>et al.</i> (4593)
Concentration and Reactivity of Carbonyl Compounds in the Atmosphere of North China	HUANG Yu, CHEN Xi, WANG Ying-hong, <i>et al.</i> (4602)
Characteristics of O ₃ Pollution and Key Precursors in Chengdu During Spring	HAN Li, CHEN Jun-hui, JIANG Tao, <i>et al.</i> (4611)
O ₃ Source Characteristics of an Industrial Area in the Yangtze River Delta Based on Boundary Observations	HUANG Qing, HUANG Yin-zhi, ZHANG Shan, <i>et al.</i> (4621)
Characteristics and Source of VOCs During O ₃ Pollution Between August to September, Langfang Development Zones	ZHANG Jing-qiao, WANG Hong-liang, FANG Xiao-yun, <i>et al.</i> (4632)
Coating-derived VOCs Emission Characteristics and Environmental Impacts from the Furniture Industry in Guangdong Province	ZENG Chun-ling, SHAO Xia, LIU Rui-yuan, <i>et al.</i> (4641)
Response of Air Quality to COVID-19 Lockdown in Xiamen Bay	XU Chao, WU Shui-ping, LIU Yi-jing, <i>et al.</i> (4650)
Similarities and Differences of Valley Winds in the Beijing Plain and Yanqing Areas and Its Impact on Pollution	WU Jin, LI Chen, MA Zhi-qiang, <i>et al.</i> (4660)
Characteristics of Atmospheric Particulate Matter Pollution and the Unique Wind and Underlying Surface Impact in the Twain-Hu Basin in Winter	ZHU Yan, ZHAO Tian-liang, BAI Yong-qing, <i>et al.</i> (4669)
Conversion Characterizations of Sulfate Ion and Nitrate Ion in Particulate Matter from Coal-fired Power Plants	YANG Liu, HE Qing, SHENG Zhong-yi (4678)
Water Chemical Characteristics and Influence of Exogenous Acids in the Yangtze River Basin	WANG Qi, YU Shi, JIANG Ping-ping, <i>et al.</i> (4687)
Effects of Land Use on Nutrient Concentrations in the Inflow River of Lake Taihu, China	LIAN Xin-qiao, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (4698)
Diversity of Zooplankton and Niche Characteristics of Keystone Species in the Weihe River Based on eDNA	LIANG Dong, XIA Jun, SONG Jin-xi, <i>et al.</i> (4708)
Occurrence, Distribution, and Ecological Risk Assessment of Pharmaceutical and Personal Care Products in the Aquatic Environment of Sanya City, China	REN Bing-nan, GENG Jing (4717)
Screening of Priority Pollutants and Risk Assessment for Surface Water from Shengjin Lake	GONG Xiong-hu, DING Qi-qi, JIN Miao, <i>et al.</i> (4727)
Long-term Changes and Drivers of Ecological Security in Shahe Reservoir, China	YANG Wen-bin, DUAN Wen-xiu, CUI Yang, <i>et al.</i> (4739)
Seasonal Variation and Influencing Factor Analysis of Antibiotic Resistance Genes in Water Supply Reservoirs of Central China	ZHANG Kai, XIN Rui, LI Kuang-jia, <i>et al.</i> (4753)
Geochemical Characteristics and Driving Factors of NO ₃ -Type Groundwater in the Rapidly Urbanizing Pearl River Delta	LÜ Xiao-li, LIU Jing-tao, HAN Zhan-tao, <i>et al.</i> (4761)
Spatial Hydrochemical Characteristics and Controlling Factors of Surface Water in the Yancheng Area	WANG Jian, ZHANG Hua-bing, XU Jun-li, <i>et al.</i> (4772)
Identification of Dredging Depths Based on Sediment Vertical Distribution Profiles of Total Nitrogen and Total Phosphorus and Their Adsorption-desorption Equilibria	ZHOU Ya-ting, CHEN Xing-hong, LI Li-qing, <i>et al.</i> (4781)
Role of Borate and Phosphate Buffers in the Degradation of Organic Compounds in a PMS/Co ²⁺ System; Influencing Factors and Mechanisms	WAN Qi-qi, CHEN Zhu-hao, CAO Rui-hua, <i>et al.</i> (4789)
Degradation 2,2',4,4'-Tetrabromodiphenyl Ether by Activated Peroxymonosulfate Using Magnetic Biochar Supported α -MnO ₂	LI Xin, YIN Hua, LUO Hao-yu, <i>et al.</i> (4798)
Characteristics and Mechanisms of Bacteriophage MS2 Inactivation in Water by UV Activated Sodium Persulfate	ZHANG Chong-miao, YANG Hao-ming, WANG Zhen (4807)
Adsorption Characteristics of Phosphate on Cerium Modified Water Hyacinth Biochar	WANG Guang-ze, ZENG Wei, LI Shuai-shuai (4815)
Removal Efficiency and Mechanism of Ammonia Nitrogen in a Low Temperature Groundwater Purification Process	LI Dong, LIU Meng-hao, ZHANG Rui-miao, <i>et al.</i> (4826)
Speciation and Ecological Risk Assessment of Heavy Metal(loid)s in the Municipal Sewage Sludge of China	GENG Yuan-meng, ZHANG Chuan-bing, ZHANG Yong, <i>et al.</i> (4834)
Meta-analysis of Microbial Communities in the Activated Sludge of Wastewater Treatment Plants Under Different Climate Types	YANG Si-hang, QIN Ze-sheng, LIANG Man-chun (4844)
Partial Nitrification and Anaerobic Ammonia Oxidation Synergistic Denitrification to Remove Nitrogen and Carbon from Domestic Sewage	QIN Yan-rong, YUAN Zhong-ling, ZHANG Ming, <i>et al.</i> (4853)
Cultivation and Performance Analysis of Simultaneous Partial Nitrification, ANAMMOX, and Denitrification Granular Sludge	ZHOU Feng, LIU Yong-di, LI Wei (4864)
Application of Various Methods to Extract Microplastic from Typical Soils in China	ZHAO Xiao-li, LIU Zi-han, CONG Chen-yu, <i>et al.</i> (4872)
Evaluation and Sources of Heavy Metal Pollution in the Surface Soil of the Qaidam Basin	CHEN Liang, ZHANG Xi-ying, TANG Qi-liang, <i>et al.</i> (4880)
Content and Ecological Risks of Heavy Metals in Soil with Different Land Uses in a Rapidly Urbanizing Area	LI Meng-ting, SHEN Cheng, WU Jian, <i>et al.</i> (4889)
Selenium Geochemical Characteristics and Influencing Factors of Paddy Fields in Du'an County, Guangxi	LIU Fei, YANG Ke, XU Ren-ting, <i>et al.</i> (4897)
Carbonized Apple Branches Decrease the Accumulation and Damage of Cadmium on Apple Rootstock by Reducing DTPA-Cd in Soil	DENG Bo, XUN Mi, ZHANG Wei-wei, <i>et al.</i> (4908)
Accumulation and Health Risk of Heavy Metals in Cereals, Vegetables, and Fruits of Intensive Plantations in Hainan Province	YANG Jian-zhou, WANG Zhen-liang, GAO Jian-weng, <i>et al.</i> (4916)
Correlation Analysis among Environmental Antibiotic Resistance Genes Abundance, Antibiotics Concentrations, and Heavy Metals Concentrations Based on Web of Science Searches	MIAO Sun, CHEN Lei, ZUO Jian-e (4925)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Tetracycline Antibiotics in Farmland Soil in Yinchuan	ZHANG Xiao-hong, TAO Hong, WANG Ya-juan, <i>et al.</i> (4933)
Effect of Manure from Different Sources on the Leaching of Antibiotics in Soil	LI Bin-xu, ZHU Chang-xiong, SONG Ting-ting, <i>et al.</i> (4942)
Analysis of the Traits of Nitrogen Metabolism Pathways for Several Forest Soils in Eastern China	LÜ Xue-li, ZHAO Yong-peng, LIN Qing-huo, <i>et al.</i> (4951)
Denitrification Rates and <i>nirS</i> -type Denitrifying Bacteria Community Structure Characteristics of Bulk and Rhizosphere Soil in Spring and Summer in the Alpine Wetlands of the Qinghai-Tibet Plateau	LI Yu-qian, MA Jun-wei, GAO Chao, <i>et al.</i> (4959)
Microbial Community Structure of Soil Methanogens and Methanotrophs During Degradation and Restoration of Reed Wetlands in the Songnen Plain	WANG Qiu-ying, WANG Na, LIU Ying, <i>et al.</i> (4968)
Characteristics of Bacterial Community Structure in Fluvo-aquic Soil Under Different Rotation Fallow	NAN Zhen-wu, LIU Zhu, DAI Hong-cui, <i>et al.</i> (4977)
Response of Photosynthetic Bacterial Community to Cadmium Contamination in Paddy Soil	LUO Lu-yun, JIN De-cai, WANG Dian-dong, <i>et al.</i> (4988)
Community Distribution of the Rhizospheric and Endophytic Bacteria of <i>Phragmites australis</i> and Their Limiting Factors in Iron Tailings	CAO Man-man, WANG Fei, ZHOU Bei-hai, <i>et al.</i> (4998)
Effects of Combination of Organic and Inorganic Nitrogen on Nitrification and Denitrification in Two Salinized Soils	ZHOU Hui, SHI Hai-bin, ZHANG Wen-cong, <i>et al.</i> (5010)
Response of Yield, CH ₄ , and N ₂ O Emissions from Paddy Fields to Long-term Elevated CO ₂ Concentrations	YU Hai-yang, SONG Kai-fu, HUANG Qiong, <i>et al.</i> (5021)
Effects of Feedstock Material and Pyrolysis Temperature on Dissolved Organic Matter in Biochars	YAN Dai-hong, MA Ya-pei, SONG Kai-yue, <i>et al.</i> (5030)
Spatiotemporal Variations in Atmospheric Urban Heat Island Effects and Their Driving Factors in 84 Major Chinese Cities	LI Yu, ZHOU De-cheng, YAN Zhang-mei (5037)
Research Progress in the Odorants and Their Emissions from Indoor Building Decoration Materials	ZHANG Wan-zhong, ZHANG Peng-yi (5046)